

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-289206

(43)Date of publication of application : 04.10.2002

(51)Int.Cl.

H01M 4/88  
H01M 4/86  
H01M 4/90  
H01M 8/02  
H01M 8/10

(21)Application number : 2001-088503

(71)Applicant : HITACHI CABLE LTD

(22)Date of filing : 26.03.2001

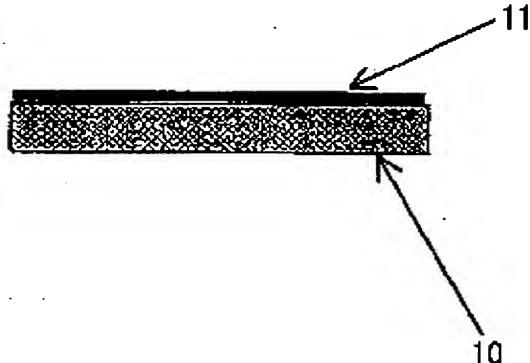
(72)Inventor : KIYOFUJI MASAHIRO  
WAJIMA MINEO

## (54) FUEL CELL

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a high-reliability fuel cell capable of reducing the quantity of a catalyst metal to remarkably reduce the manufacturing cost.

SOLUTION: In a method for forming a catalyst layer for a solid polymer electrolyte fuel cell on a solid polymer electrolyte or on a material in contact with the solid high polymer electrolyte, this solid polymer electrolyte fuel cell is characterized in that the catalyst layer is formed without using a solvent. When the catalyst layer is formed, a method for heating and depositing a catalyst material in vacuum, a method for spattering the catalyst material or a method for heating or depositing it with an electron beam is used without using an application method. For instance, a Pt (platinum) catalyst 11 is formed on a gas diffusion layer 10 by a spattering method.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of  
rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

## \* NOTICES \*

**JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.**

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

## CLAIMS

---

### [Claim(s)]

[Claim 1] It is the polymer electrolyte fuel cell cel characterized by forming without using a solvent at least for one side of this catalyst bed in the solid-state polyelectrolyte mold fuel cell cel which formed the anode layer and the cathode layer in the both sides of the solid-state polyelectrolyte film through the catalyst bed, respectively.

[Claim 2] The solid-state polyelectrolyte mold fuel cell cel according to claim 1 characterized by consisting of an ingredient with which said catalyst bed contains the compound containing a single element or two elements or more.

[Claim 3] The solid-state polyelectrolyte mold fuel cell cel according to claim 1 to which said catalyst bed is characterized by consisting of Pt, Ru, or an ingredient containing the both.

[Claim 4] The solid-state polyelectrolyte mold fuel cell cel according to claim 1 to 3 to which said catalyst bed is characterized by a monolayer or two layers or more consisting of multilayer structure by which the laminating was carried out.

[Claim 5] The solid-state polyelectrolyte mold fuel cell cel according to claim 1 to 4 characterized by forming said catalyst bed by heating and vapor-depositing said ingredient in a vacuum.

[Claim 6] The solid-state polyelectrolyte mold fuel cell cel according to claim 1 to 4 characterized by forming said catalyst bed by carrying out sputtering of said ingredient.

[Claim 7] The solid-state polyelectrolyte mold fuel cell cel according to claim 1 to 4 characterized by forming said catalyst bed by heating and vapor-depositing said ingredient with an electron ray beam.

[Claim 8] The solid-state polyelectrolyte mold fuel cell cel characterized by making a cathode gas passageway open the front-face side of a cathode pole wide in a solid-state polyelectrolyte mold fuel cell cel according to claim 1 to 7.

---

[Translation done.]

## \* NOTICES \*

JPO and NCIPPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

## DETAILED DESCRIPTION

---

### [Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to a solid-state polyelectrolyte mold fuel cell cel, and relates to the polymer electrolyte fuel cell cel which has the description in a catalyst bed especially.

[0002]

[Description of the Prior Art] In the former, the polymer electrolyte fuel cell which uses hydrogen gas as a fuel and uses oxygen gas as an oxidizer has structure as shown in drawing 8.

[0003] As for the fuel cell of drawing 8, the anode pole (negative electrode) 81 and the cathode pole (positive electrode) 82 where catalysts 83 and 84 were given are established in the both sides of the solid-state polyelectrolyte film 80, respectively.

[0004] Hydrogen gas and oxygen gas are supplied to the anode pole 81 and the cathode pole 82, respectively.

[0005] On the anode pole 81 where the catalyst was given, the hydrogen gas supplied from outside passes through the anode pole 81 where the catalyst was given, reaches near the reaction band, is absorbed by the catalyst, and is divided into activity hydrogen ion and electron. The hydrogen ion moves to the cathode pole 82 where it moved [ on ] in the inside of a solid-electrolyte membrane 80, and the catalyst was given with the moisture in a solid-electrolyte membrane 80.

[0006] On the other hand, on the cathode pole 82 where the catalyst was given, the oxygen molecule to which two electrons were supplied from reception and outside reacts with the water from the solid polymer electrolyte film 80, and a hydroxide ion is generated.

[0007]  $1 / 2O_2 + H_2O \rightarrow 2OH^-$  The hydroxide ion generated on this cathode pole 82 reacts with the hydrogen ion which has moved in the inside of the solid-state polyelectrolyte film 80, forms water, and constitutes the whole circuit.

[0008] Therefore, the reaction of the whole cell is  $H_2 + 1 / 2O_2 \rightarrow 2H_2O$ , and the hydrogen in fuel gas and the oxygen in air react, and it becomes the reaction which water generates.

[0009] At this time, on the other hand, migration of an electron will take place and it will function as a cell.

[0010]

[Problem(s) to be Solved] An actual fuel cell cel sandwiches the solid-state polyelectrolyte film 100 with the electrode 103,104 with a catalyst bed like drawing 9 and drawing 10, and takes the structure which pipes and supplies hydrogen gas and oxygen gas. It is said that the thing important here for manufacture of a highly efficient cell cel is the method of application of a catalyst. Pt (platinum) is usually used for a catalyst for an anode pole and a cathode pole, there is a possibility that CO (carbon monoxide) may be contained in an anode pole side fuel (hydrogen gas) by one side in it, and Pt by which Ru (ruthenium) addition was carried out is used as a cure against CO poisoning in the system of a methanol and a gasoline reforming system. These catalysts are allotted on the solid-state polyelectrolyte film 100, a hydrogen content child is divided into a hydrogen ion (proton) and an electron in the interface of three layers, a hydrogen ion spreads the inside of the polyelectrolyte film, and moves to the direction of the cathode pole 103, and an electron is taken out through the gaseous diffusion layer (body part of an electrode) and separator which are the conductivity which touches from a catalyst. Here, it is conventionally deposited by Pt from the water solution of Pt compound on a carbon powder front face first as the formation approach of a catalyst

bed. Although the rate of a deposit also has balance, such as the next method of application, the thing of the weight ratio 1:1 of carbon and platinum etc. is used. Thus, the approach of melting the carbon powder which carried out compound support of Pt or the Ru in the solution of the polyelectrolyte film, and applying it using various methods of application is common.

[0011] However, there is a trouble which is raised to a degree in the carbon powder support catalyst bed by these methods of application. Although a clearance will be generated if a certain amount of thickness is not given in order to apply with the solvent which melted fine particles in the solution, if the 1st trouble is too thick, the hydrogen ion pair of it will be carried out, and it is for Pt which cannot form a three-phase-circuit interface and does not become a catalyst, and Ru to increase [ becoming a resistance component or ]. All that matters most at this time is that cost becomes high, when the amount of Pt used and Ru which are a rare metal increases. In order to lower a manufacturing cost, the direction with as much as possible few coverage and the amounts of support is desirable.

[0012] Moreover, since carbon powder support catalysts are fine particles, the 2nd trouble is vibration, friction with the gaseous diffusion layer by expansion and contraction of the solid-state polyelectrolyte by change of temperature and humidity, etc., and is condensing and becoming a ball in an anticipated-use environment.

[0013] Each of two above-mentioned troubles leads to the fall of an initial cost, the initial effectiveness of a cell, and the dependability of a cell.

[0014] In addition, in drawing 9, 90 is cathode gas (hydrogen) installation tubing, 91 is anode gas (oxygen or air) installation tubing, and 92 is a generation water exhaust pipe.

[0015] The purpose of this invention is to offer the reliable fuel cell cel which solved the above-mentioned technical problem, reduced the amount of the catalyst metal used, and realized reduction of a large manufacturing cost.

[0016]

[Means for Solving the Problem] In order to attain the above-mentioned purpose, invention of claim 1 is a solid-state polyelectrolyte mold fuel cell cel characterized by forming this catalyst bed without using a solvent in the approach of forming the catalyst bed in a solid-state polyelectrolyte mold fuel cell cel on the ingredient which touches a solid-state polyelectrolyte top or a solid-state polyelectrolyte.

[0017] Invention of claim 2 is a solid-state polyelectrolyte mold fuel cell cel according to claim 1 characterized by using a single element or two compounds or more as a catalyst ingredient which forms said catalyst bed.

[0018] Invention of claim 3 is Pt, Ru, or a solid-state polyelectrolyte mold fuel cell cel according to claim 1 characterized by using the both as a catalyst ingredient which forms said catalyst bed.

[0019] Invention of claim 4 is a solid-state polyelectrolyte mold fuel cell cel according to claim 1 to 3 characterized by using the multilayer structure which carried out the laminating of a monolayer or the two layers or more as said catalyst bed.

[0020] Invention of claim 5 is a solid-state polyelectrolyte mold fuel cell cel according to claim 1 to 4 characterized by producing said catalyst bed using the approach of heating a catalyst ingredient in a vacuum and vapor-depositing it.

[0021] Invention of claim 6 is a solid-state polyelectrolyte mold fuel cell cel according to claim 1 to 4 characterized by producing said catalyst bed using the approach of carrying out sputtering of the catalyst ingredient.

[0022] Invention of claim 7 is a solid-state polyelectrolyte mold fuel cell cel according to claim 1 to 4 characterized by producing said catalyst bed using the approach of heating and vapor-depositing with an electron ray beam.

[0023] Invention of claim 8 is a solid-state polyelectrolyte mold fuel cell cel characterized by making a cathode gas passageway open the front face of abbreviation of an electrode layer with a cathode pole side catalyst bed wide in a solid-state polyelectrolyte mold fuel cell cel according to claim 1 to 7.

[0024] By applying the carbon powder which carried out compound support of Pt or the Ru, by vapor-depositing Pt, Ru, or its both, and forming a catalyst in this invention, to having formed the catalyst, the amount of the catalyst metal used can be reduced and a fuel cell cel with the high

dependability which realized reduction of a large manufacturing cost can be offered in the conventional fuel cell cel in the above.

[0025]

[Embodiment of the Invention] Hereafter, the gestalt of suitable operation of this invention is explained in full detail based on an accompanying drawing.

[0026] On the gaseous diffusion layer 10 which constitutes the body part of an electrode of a cathode electrode, Pt (platinum) catalyst is used for drawing 1, it forms a spatter, and the thickness of the Pt catalyst bed 11 is 4nm at this time.

[0027] What Pt catalyst was used for drawing 2 and it formed the spatter on the gaseous diffusion layer 12 which constitutes the body part of an electrode of an anode electrode, and carried out the spatter vacuum evaporationo of the Ru (ruthenium), and formed Pt and the Ru catalyst bed 13 on it further is shown. At this time, Ru catalyst bed is 4nm and the thickness of Pt and the Ru catalyst bed 13 whole is 8nm.

[0028] Drawing 2 shows signs that the solid-state polyelectrolyte 14 is inserted, using what joined what joined the gaseous diffusion layer 12, and Pt and the Ru catalyst bed 13, and the gaseous diffusion layer 10 and the Pt catalyst bed 11 as a whole.

[0029] Drawing 3 sandwiches a solid-state polyelectrolyte using these catalyst beds, and heats it at 250 degrees C for about 5 minutes, and pressurizes the pressure of 2 atmospheric-pressure extent, unifies a gaseous diffusion layer, a catalyst bed, and a solid-state polyelectrolyte layer, forms MEA (Membrane-Electrode Assembly)38, and expresses further the solid-state polyelectrolyte mold fuel cell cel produced using this MEA38.

[0030] At this time, Pt and Ru catalyst bed were used for the anode pole side (fuel gas side), and CO-proof poisoning nature was raised.

[0031] In addition, as shown in drawing 3 (a), you may produce so that the gas slot formed in the separator for anodes and the separator for cathodes may become parallel mutually, and as shown in drawing 3 R> 3 (b), the gas slot formed in the separator for anodes and the separator for cathodes may produce so that it may intersect perpendicularly mutually. Moreover, although vapor-deposited this time using the spatter, it is also possible to use other vacuum deposition (for example, electron ray beam vacuum deposition etc.).

[0032] The fuel cell cel produced to drawing 4 using MEA shown in drawing 2 is shown.

[0033] Here, drawing 4 (a) is the front view which saw the fuel cell cel from the cathode pole side, and drawing 4 (b) is the A-A sectional view of the fuel cell cel shown in drawing 4 (a).

[0034] The fuel cell cel shown in this drawing 4 does not use a separator for a cathode side, but produces it in a configuration which is opened to cathode gas.

[0035] As other examples of this invention, as shown in drawing 5, the structure which formed two or more fuel cell cels in the same plane is shown.

[0036] Drawing 5 is the example which manufactured the cel of 3x3. As a base plate 56 shown in drawing 5, you may be the ingredient of a resin system that what is necessary is just to choose an insulating ingredient.

[0037] In this example, the polycarbonate was adopted as a base plate 56.

[0038] The A-A sectional view of drawing 5 (a) is shown in drawing 5 (b). Piping for anode fuel gas was given to each unit cell at the base plate 56. Moreover, the fuel cell unit was produced by carrying out the laminating of the carbon paper 50 of the carbon paper 53 of the electrode layer with a catalyst for anode poles, the solid-state polyelectrolyte film 52, and the electrode layer with a catalyst for cathode poles to the separator 55 for anode poles, and suppressing these by the cathode side framework (cathode covering) 51. Although not shown in drawing 5 R> 5, each of these units are electrically connected with the serial.

[0039] This time, NafionN-115 which are the solid-state polyelectrolyte film made from DuPont were used for the solid-state polyelectrolyte film 53.

[0040] In this fuel cell cel, the air of atmospheric pressure was used for the gas raw material by the side of a cathode, and the pure hydrogen of 0.5 atmospheric pressures was used for the fuel gas by the side of an anode.

[0041] Consequently, on the whole in this fuel cell cel, the voltage output of  $0.7 \times 9 = 6.3$  V was obtained by obtaining per one cel and the electrical potential difference of 0.7V, being in-series and

connecting these.

[0042] As one of the examples of this invention, the example of a cylindrical fuel cell cel is shown in drawing 6. MEA61 was rolled on the periphery of the anode side separator 62 of a cylindrical fuel cell cel, and the form covered with the cathode side separator 60 was formed. In addition, the anode side separator had the through tube 66 to the heart, and between the through tube 66 and each slot formed in the anode side separator 62, the hole (not shown) is vacant so that an anode pole side separator may be penetrated, and a through tube 66 and each slot are connected by the hole which penetrates the anode side separator.

[0043] Moreover, the desiccation by the side of the anode of MEA can be prevented by a humidifier's 53 recovering the water discharged from the drain, and supplying the water to an anode gas side by connecting a humidifier 53 with tubing for preparing a drain in the lower part of the slot formed in the cathode side separator 60, and connecting the drain and humidifier 63 with it, and introducing fuel gas into it in an anode side gas slot. Furthermore, superfluous moisture was discharged from the drain 67.

[0044] A cylindrical cel is shown in drawing 7 as other examples of this invention.

[0045] On the periphery of the anode side separator 71, this cylindrical cel rolls MEA which consists of carbon paper 74 of the carbon paper 72 of the electrode layer with a catalyst for cathodes, the solid-state polyelectrolyte film 73, and the electrode layer with a catalyst for anodes, and suppresses these with a wire 70.

[0046] Although carried out by being cylindrical in this example, a rectangle is sufficient, and in case these [ some ] are arranged collectively, an advantageous hexagon is good from the point of a space consistency.

[0047]

[Effect of the Invention] As mentioned above, according to this invention, the amount of the catalyst metal used at the time of producing a polymer electrolyte fuel cell cel could be reduced sharply, and, thereby, reduction of a large manufacturing cost was able to be realized.

[0048] Moreover, by having formed the catalyst in the solid-state poly membrane or the gaseous diffusion layer directly, it was hard to start aging and the reliable fuel cell cel was able to be offered.

[0049] Moreover, since catalysts are platinum groups, such as Pt (platinum) and Ru (ruthenium), recovery playback of the catalyst ingredient which adhered in vacuum evaporationo equipment is very easy, and manufacturing by the very slight loss is possible.

---

[Translation done.]

**\* NOTICES \***

**JPO and NCIPPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.**

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

**DESCRIPTION OF DRAWINGS**

---

**[Brief Description of the Drawings]**

[Drawing 1] It is drawing showing the gestalt of 1 operation of this invention.

[Drawing 2] It is drawing showing MEA produced using the gaseous diffusion layer with a catalyst of drawing 1.

[Drawing 3] It is drawing showing the solid-state polyelectrolyte mold fuel cell cel produced using MEA of drawing 2.

[Drawing 4] It is drawing showing the gestalt of other operations of this invention.

[Drawing 5] It is drawing showing the gestalt of other operations of this invention.

[Drawing 6] It is drawing showing the gestalt of other operations of this invention.

[Drawing 7] It is drawing showing the gestalt of other operations of this invention.

[Drawing 8] It is drawing showing the conventional fuel cell cel.

[Drawing 9] It is drawing showing the conventional fuel cell cel.

[Drawing 10] It is drawing showing the conventional fuel cell cel.

**[Description of Notations]**

10 Gaseous Diffusion Layer for Cathodes

11 Catalyst Bed for Cathodes

12 Gaseous Diffusion Layer for Anodes

13 Catalyst Bed for Anodes

14 Solid-state Polyelectrolyte Layer

30 Solid-state Polyelectrolyte Layer

33 Slot for Cathode Gas

35 Separator for Cathodes

36 Separator for Anodes

37 Sealant

38 MEA Film

40 Carbon Paper of Electrode Layer with Catalyst for Cathodes

41 Cathode Covering

42 Solid-state Polyelectrolyte Film

43 Carbon Paper of Electrode Layer with Catalyst for Anodes

50 Carbon Paper of Electrode Layer with Catalyst for Cathodes

51 Cathode Covering

52 Solid-state Polyelectrolyte Film

53 Carbon Paper of Electrode Layer with Catalyst for Anodes

54 Slot for Anode Gas

55 Separator for Anodes

56 3X3 Cel Unit Base Plate

60 Cylindrical Separator for Cathodes

61 MEA

63 Humidifier

67 Drain Hole (Drain)

62 Separator for Anodes

66 Through Tube

64 Fuel Gas (Hydrogen Gas) Bomb  
65 Oxygen Chemical Cylinder or Air Bomb  
70 Sheet Presser-Foot Wire  
71 Separator for Anodes  
72 Carbon Paper of Electrode Layer with Catalyst for Cathodes  
73 Solid-state Polyelectrolyte Film  
74 Carbon Paper of Electrode Layer with Catalyst for Anodes  
76 77 Seal plate  
85 Load  
90 Cathode Gas (Hydrogen) Installation Tubing  
91 Anode Gas (Oxygen or Air) Installation Tubing  
92 Generation Water Exhaust Pipe  
100 Solid-state Polyelectrolyte Film  
101,102 Separator of a general polymer electrolyte fuel cell cel  
103,104 Electrode with a catalyst bed  
105 Cathode Side Gas Slot  
106 Anode Side Gas Slot

---

[Translation done.]

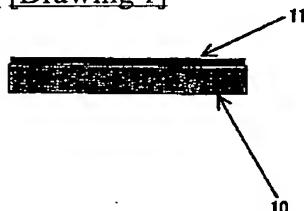
## \* NOTICES \*

JPO and NCIPPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

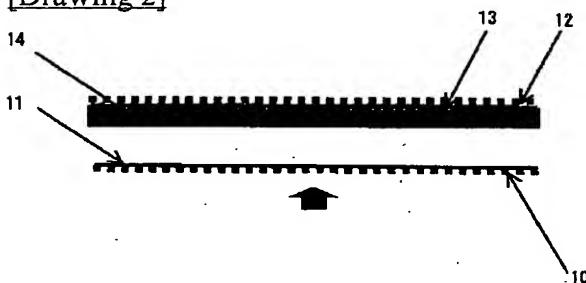
1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

## DRAWINGS

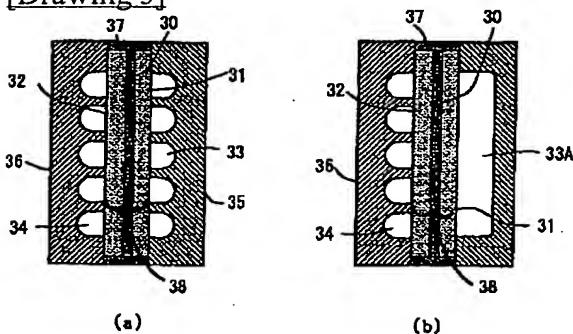
## [Drawing 1]



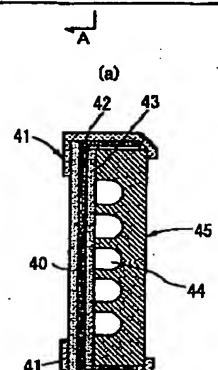
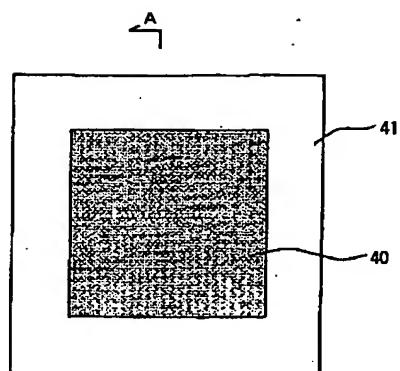
## [Drawing 2]



## [Drawing 3]

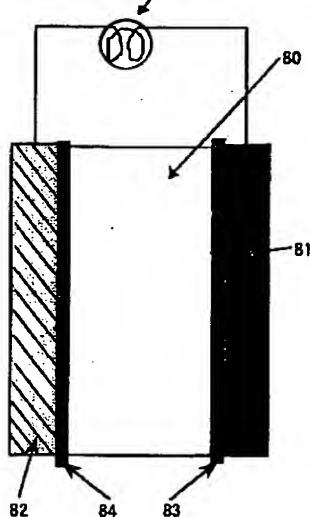


## [Drawing 4]

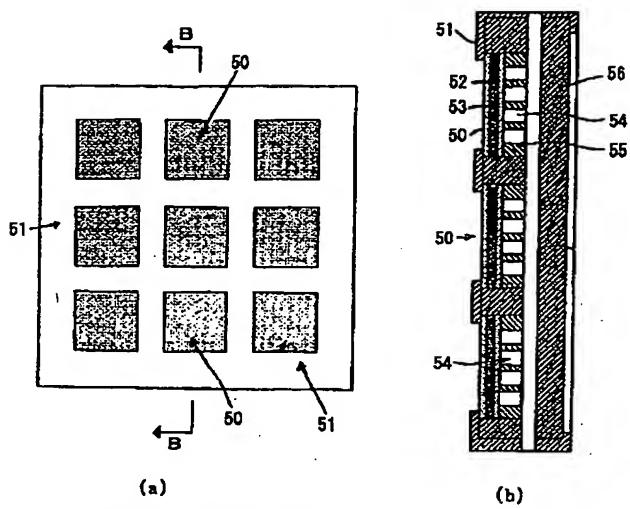


(b)

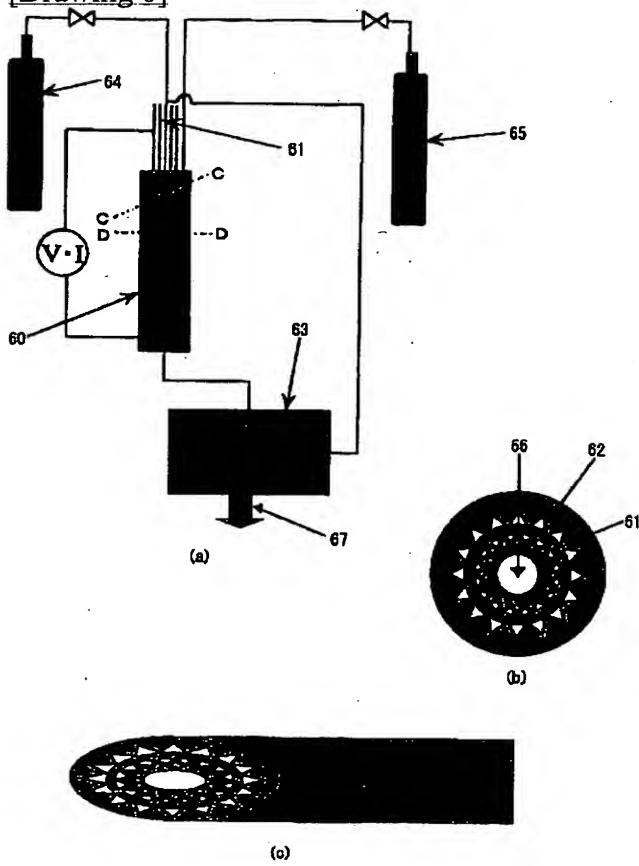
[Drawing 8]



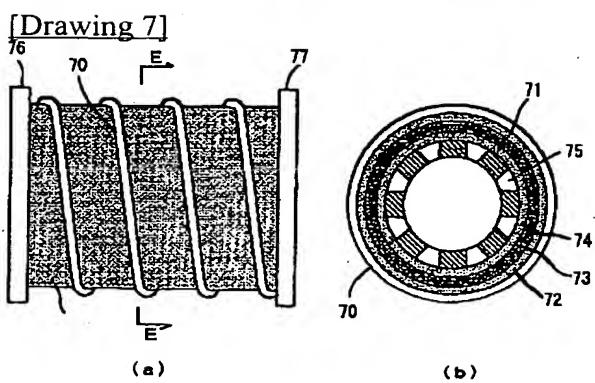
[Drawing 5]



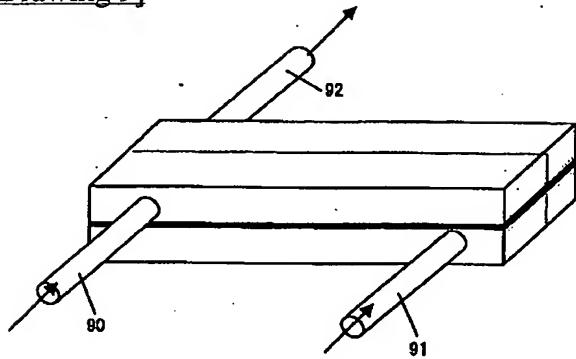
[Drawing 6]



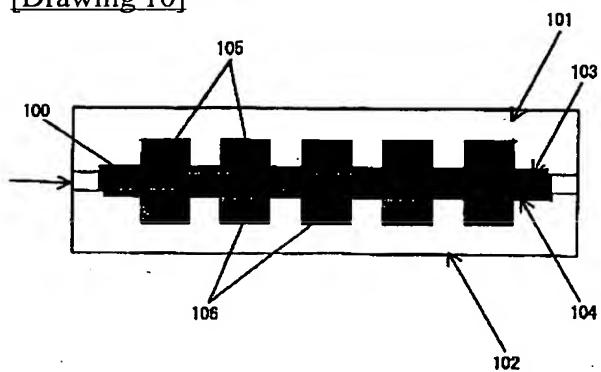
BEST AVAILABLE COPY



[Drawing 9]



[Drawing 10]



BEST AVAILABLE COPY

[Translation done.]

(19)日本国特許庁 (JP)

## (12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2002-289206

(P2002-289206A)

(43)公開日 平成14年10月4日 (2002.10.4)

(51)Int.CI'  
H 01 M 4/88  
4/88  
4/90  
8/02  
8/10

試別記号

F I  
H 01 M 4/88  
4/88  
4/90  
8/02  
8/10

テマコード(参考)  
K 5 H 0 1 8  
M 5 H 0 2 6  
B  
E

審査請求 未請求 請求項の数 8 OL (全 6 頁)

(21)出願番号

特願2001-88503 (P2001-88503)

(22)出願日

平成13年3月26日 (2001.3.26)

(71)出願人 000005120

日立電線株式会社

京都市千代田区大手町一丁目6番1号

(72)発明者 清藤 雅宏

茨城県日立市日高町5丁目1番1号 日立  
電線株式会社総合技術研究所内

(72)発明者 和島 峰生

茨城県土浦市木田余町3550番地 日立電線  
株式会社アドバンスリサーチセンター内

(74)代理人 100116171

弁理士 川澄 広

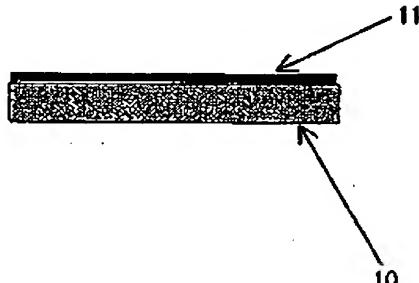
Pターム(参考) 5H018 AA06 AS02 AS03 BB07 ED03  
5H026 AA08 BB00 ED02

(54)【発明の名称】 燃料電池セル

(57)【要約】 (修正有)

【課題】触媒金属の使用量を低減し、大幅な製造コストの低減を実現した信頼性の高い燃料電池セルを提供する。

【解決手段】本発明は、固体高分子電解質型燃料電池セルにおける触媒層を、固体高分子電解質の上、もしくは、固体高分子電解質に接する材料の上に形成する方法において、該触媒層を、溶剤を用いないで形成したことを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池セルである。すなわち触媒層を形成する際に、塗布法を用いずに、触媒材料を真空中で加熱し、蒸着する方法、また、触媒材料をスパッタリングする方法、その他、電子線ビームで加熱し、蒸着する方法を用いた。例えば、ガス粒散層10の上に、Pt(白金)触媒11をスパッタ法で形成した。



(2)

特開2002-289206

2

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 固体高分子電解質膜の両側に矢ヶ触媒層を介して、アノード層、カソード層を形成した固体高分子電解質型燃料電池セルにおいて、該触媒層の少なくとも一方は、溶剤を用いずに形成したものであることを特徴とする固体高分子型燃料電池セル。

【請求項2】 前記触媒層が、單一元素、もしくは、2つ以上の元素を含む化合物を含む材料からなることを特徴とする請求項1記載の固体高分子電解質型燃料電池セル。

【請求項3】 前記触媒層が、Pt、Ru、もしくは、その両方を含む材料からなることを特徴とする請求項1記載の固体高分子電解質型燃料電池セル。

【請求項4】 前記触媒層が、單一層、もしくは、2つ以上の層が積層された多層構造からなることを特徴とする請求項1乃至3記載の固体高分子電解質型燃料電池セル。

【請求項5】 前記触媒層が、前記材料を真空中で加熱、蒸着することにより形成されたものであることを特徴とする請求項1乃至4記載の固体高分子電解質型燃料電池セル。

【請求項6】 前記触媒層が、前記材料をスパッタリングすることにより形成されたものであることを特徴とする請求項1乃至4記載の固体高分子電解質型燃料電池セル。

【請求項7】 前記触媒層が、前記材料を電子線ビームで加熱、蒸着することにより形成されたものであることを特徴とする請求項1乃至4記載の固体高分子電解質型燃料電池セル。

【請求項8】 請求項1乃至7記載の固体高分子電解質型燃料電池セルにおいて、カソード極の表面側をカソードガス流路に開放させたことを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池セル。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、固体高分子電解質型燃料電池セルに係り、特に、触媒層に特徴を有する固体高分子型燃料電池セルに関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】 従来において、水素ガスを燃料とし、酸素ガスを酸化剤とする固体高分子型燃料電池は、図8に示すような構造となっている。

【0003】 図8の燃料電池は、固体高分子電解質膜80の両側には、それぞれ、触媒83、84が付与されたアノード極(負極)81及びカソード極(正極)82が設けられている。

【0004】 水素ガス及び酸素ガスは、それぞれアノード極81とカソード極82に供給される。

【0005】 触媒が付与されたアノード極81では、外から供給された水素ガスが、触媒が付与されたアノード

極81を通過して反応帯域近くに達し、触媒に吸収されて活性な水素イオンと電子に分かれ、その水素イオンは、固体電解質膜80中の水分と共に固体電解質膜80中を移動して触媒が付与されたカソード極82に移動する。

【0006】 一方、触媒が付与されたカソード極82では、2個の電子を受け取り、外から供給された酸素分子が高分子固体電解質膜80からの水と反応して、水酸イオンを生成する。

【0007】  $1/2O_2 + H_2O \rightarrow 2OH^-$ 

このカソード極82で生成した水酸イオンは、固体高分子電解質膜80中を移動してきた水素イオンと反応して水を形成し、全体の回路を構成する。

## 【0008】 従って、電池全体の反応は、



となり、燃料ガス中の水素と空気中の酸素が反応し、水が生成する反応となる。

【0009】 このとき、一方では、電子の移動が起こり、電池として機能することになる。

## 【0010】

【解決しようとする課題】 実際の燃料電池セルは、図9及び図10のように固体高分子電解質膜100を触媒層付電極103、104で挟み、水素ガスや酸素ガスを配管し供給する構造を取る。ここで高性能な電池セルの製作のために重要なことは、触媒の塗布方法であると言われている。触媒には、通常Pt(白金)がアノード極、カソード極共に用いられ、一方で、CO(一酸化炭素)がアノード極側燃料(水素ガス)に含まれる恐れがあり、メタノール、ガソリン改質系のシステムでは、CO

30 級毒対策として、Ru(ルテニウム)添加されたPtが用いられている。これらの触媒を固体高分子電解質膜100上に配し、3層の界面で水素分子は水素イオン(プロトン)と電子に分かれ、水素イオンは高分子電解質膜中を伝播し、カソード極103の方へ移動し、電子は触媒上から接触している導電性であるガス拡散層(電極本体部分)、セパレータを通して取り出される。ここで、従来は触媒層の形成方法として、まず、カーボン粉表面にPt化合物の水溶液からPtを析出している。析出の割合は、あの塗布方法などの兼ね合いもあるが、カーボンと白金の重量比1:1のものなどが用いられている。このようにPtもしくはRuを複合保持させたカーボン粉を、高分子電解質膜の溶液に溶かして、色々な塗布方法を用いて塗布する方法が一般的である。

【0011】しかし、これらの塗布方法によるカーボン粉保持触媒層には、次に上げるような問題点がある。第1の問題点は、粉体を溶液に溶かした溶剤によって塗布するために、ある程度の厚みを持たせないと隙間が生じるが、厚すぎると水素イオン対し、抵抗成分になってしまことや、3相界面が形成できなくて触媒にならないPt、Ruが増加することにある。このときに一番問題

(3)

特開2002-289206

4

3

なのは、希少金属であるPt、Ruの使用量が増加することによってコストが高くなることである。製造コストを下げるためには、できる限り塗布量、担持量が少ない方が望ましい。

【0012】また、第2の問題点は、カーボン粉担持触媒は粉体であるために、通常の使用環境では、振動や、温度及び湿度の変化による固体高分子電解質の伸び縮みによるガス拡散層との摩擦などで、凝集し、玉になることである。

【0013】上記2つの問題点は、いずれも、イニシャルコスト、電池の初期効率、電池の信頼性の低下に繋がるものである。

【0014】なほ、図9において、90はカソードガス(水素)導入管であり、91はアノードガス(酸素、もしくは空気)導入管であり、92は生成水排出管である。

【0015】本発明の目的は、上記課題を解決し、触媒金属の使用量を低減し、大幅な製造コストの低減を実現した、信頼性の高い燃料電池セルを提供することにある。

【0016】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するために、請求項1の発明は、固体高分子電解質型燃料電池セルにおける触媒層を、固体高分子電解質の上、もしくは、固体高分子電解質に後する材料の上に形成する方法において、該触媒層を、溶剤を用いないで形成したことを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池セルである。

【0017】請求項2の発明は、前記触媒層を形成する触媒材料として、單一元素、もしくは、2つ以上の化合物を用いたことを特徴とする請求項1記載の固体高分子電解質型燃料電池セルである。

【0018】請求項3の発明は、前記触媒層を形成する触媒材料として、Pt、Ru、もしくは、その両方を用いたことを特徴とする請求項1記載の固体高分子電解質型燃料電池セルである。

【0019】請求項4の発明は、前記触媒層として、單一層、もしくは、2つ以上の層を積層した多層構造を用いたことを特徴とする請求項1乃至3記載の固体高分子電解質型燃料電池セルである。

【0020】請求項5の発明は、前記触媒層を、触媒材料を真空中で加熱し、蒸着する方法を用いて作製したこととを特徴とする請求項1乃至4記載の固体高分子電解質型燃料電池セルである。

【0021】請求項6の発明は、前記触媒層を、触媒材料をスパッタリングする方法を用いて作製したこととを特徴とする請求項1乃至4記載の固体高分子電解質型燃料電池セルである。

【0022】請求項7の発明は、前記触媒層を、電子線ビームで加熱し、蒸着する方法を用いて作製したこととを特徴とする請求項1乃至4記載の固体高分子電解質型燃

料電池セルである。

【0023】請求項8の発明は、請求項1乃至7記載の固体高分子電解質型燃料電池セルにおいて、カソード極側触媒層付近部の略前面をカソードガス流路に開放させたことを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池セルである。

【0024】以上において、従来の燃料電池セルにおいては、PtもしくはRuを複数担持させたカーボン粉を塗布することにより触媒を形成していたのに対し、本発明においては、Pt、Ru、もしくは、その両方を蒸着して触媒を形成することにより、触媒金属の使用量を低減し、大幅な製造コストの低減を実現した信頼性の高い燃料電池セルを提供することができる。

【0025】

【発明の実施の形態】以下、本発明の好適実施の形態を添付図面に基づいて詳述する。

【0026】図1は、カソード電極の電極本体部分を構成するガス拡散層10の上に、Pt(白金)触媒をスパッタ法を用いて形成したものであり、このときPt触媒層11の厚さは4nmである。

【0027】図2は、アノード電極の電極本体部分を構成するガス拡散層12上に、Pt触媒をスパッタ法を用いて形成し、さらにその上に、Ru(ルテニウム)をスパッタ蒸着して、Pt、Ru触媒層13を形成したものを見ている。このとき、Ru触媒層は4nmであり、Pt、Ru触媒層13全体の厚みは、8nmである。

【0028】図2は全体として、ガス拡散層12とPt、Ru触媒層13とを接合したものと、ガス拡散層10とPt触媒層11とを接合したものとを用いて、固体高分子電解質14を挟む様子を示している。

【0029】図3は、これら触媒層を用いて固体高分子電解質を挟んで、約5分間、250°Cにて加熱し、且つ2気圧程度の圧力を加圧して、ガス拡散層、触媒層、固体高分子電解質層を一体化し、MEA(Membrane-Electrode Assembly)38を形成し、さらに、このMEA38を用いて作製した固体高分子電解質型燃料電池セルを表わしている。

【0030】このとき、アノード極側(燃料ガス側)にPt、Ru触媒層を用い、耐CO<sub>2</sub>毒性を向上させた。

【0031】なほ、図3(a)に示したように、アノード用セパレータとカソード用セパレータに形成されたガス溝が、互いに平行になるように作製しても良いし、図3(b)に示したように、アノード用セパレータとカソード用セパレータに形成されたガス溝が、互いに直交するように作製しても良い。また、今回は、スパッタ法を用いて蒸着を行ったが、その他の蒸着法を用いることも可能である(例えば、電子線ビーム蒸着法など)。

【0032】図4に、図2に示したMEAを用いて作製した燃料電池セルを示す。

【0033】ここで、図4(a)は、燃料電池セルをカ

(4)

特開2002-289206

5

ソード極側からみた正面図であり、図4 (b) は、図4 (a) に示した燃料電池セルのA-A断面図である。

【0034】この図4に示した燃料電池セルは、カソード側にセパレータを用いず、カソードガスに対して開放するような形状に作製したものである。

【0035】本発明の他の実施例として、図5に示したように、同一平面上に複数の燃料電池セルを形成した構造を示す。

【0036】図5は、3×3のセルを製作した例である。図5に示したベース板56としては、絶縁性の材料を選択すれば良く、例えば、樹脂系の材料であっても良い。

【0037】本実施例では、ベース板56としてポリカーボネイトを採用した。

【0038】図5 (b) には図5 (a) のA-A断面図を示す。ベース板56には、各ユニットセルにアノード燃料ガス用配管を施した。また、アノード極用セパレータ51に、アノード極用触媒付き電極膜のカーボンペーパー53、固体高分子電解質膜52、カソード極用触媒付き電極膜のカーボンペーパー50を積層し、これらをカソード側フレーム枠(カソードカバー)51で押さえつけることによって、燃料電池ユニットを作製した。図5には示してはいないが、これらの各ユニットは電気的に直列に繋がっている。

【0039】今回、固体高分子電解質膜53に、DuPont社製の固体高分子電解質膜であるNafion N-115を用いた。

【0040】この燃料電池セルでは、カソード側のガス原封に大気圧の空気を用い、また、アノード側のガス燃料には0.5気圧の純水素を用いた。

【0041】その結果、この燃料電池セルでは、1セル当たり、0.7Vの電圧を得て、これらを直列で繋ぐことによって、全体では、0.7×9=6.3Vの電圧出力を得た。

【0042】本発明の実施例の1つとして、図6に円筒型燃料電池セルの実施例を示す。円筒型燃料電池セルのアノード側セパレータ62の外周上にMEA61を巻き、カソード側セパレータ60で覆われた形を形成した。なお、アノード側セパレータは、その芯に普通孔66を有し、その普通孔66と、アノード側セパレータ62に形成された各溝との間には、アノード極側セパレータを貫通するように穴(図示せず。)が空いており、貫通孔66と各溝とは、そのアノード側セパレータを貫通する穴によって繋がっている。

【0043】また、カソード側セパレータ60に形成した溝の下部に、ドレン孔を設けて、そのドレン孔と加湿器63とを繋ぎ、また、燃料ガスをアノード側ガス導入するための管と、加湿器53を繋ぐことによって、ドレン孔から排出された水を加湿器53によって回収し、その水をアノードガス側に供給することによ

6

り、MEAのアノード側の乾燥を防ぐことができる。更に、過剰な水分はドレン67より排出した。

【0044】図7に、本発明の他の実施例として、円筒型セルを示す。

【0045】この円筒型セルは、アノード側セパレータ71の外周上に、カソード用触媒付き電極膜のカーボンペーパー72、固体高分子電解質膜73、アノード用触媒付き電極膜のカーボンペーパー74から構成されるMEAを巻き、ワイヤー70によりこれらを押さえつけたものである。

【0046】この実施例では、円筒状で行ったが、矩形でも良く、これらを何本かまとめて配置する際には、空間密度の点から有利な六角形が良い。

【0047】

【発明の効果】以上、本発明によれば、固体高分子型燃料電池セルを作製する際の触媒金属の使用量を大幅に低減することができ、それにより大幅な製造コストの低減を実現することができた。

【0048】また、触媒を、固体高分子膜やガス拡散層に直接形成したこと、経時変化を起こしにくく、信頼性の高い燃料電池セルを提供することができた。

【0049】また、触媒がPt(白金)、Ru(ルテニウム)などの白金族であるために、蒸着装置内に付着した触媒材料の回収再生が非常に容易であり、非常に僅かなロスで製造することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の一実施の形態を示す図である。

【図2】図1の触媒付ガス拡散層を用いて作製したMEAを示す図である。

【図3】図2のMEAを用いて作製した固体高分子電解質型燃料電池セルを示す図である。

【図4】本発明の他の実施の形態を示す図である。

【図5】本発明の他の実施の形態を示す図である。

【図6】本発明の他の実施の形態を示す図である。

【図7】本発明の他の実施の形態を示す図である。

【図8】従来の燃料電池セルを示す図である。

【図9】従来の燃料電池セルを示す図である。

【図10】従来の燃料電池セルを示す図である。

【符号の説明】

10 カソード用ガス拡散層

11 カソード用触媒層

12 アノード用ガス拡散層

13 アノード用触媒層

14 固体高分子電解質膜

30 固体高分子電解質膜

33 カソードガス用管

35 カソード用セパレータ

36 アノード用セパレータ

37 シール材

50 38 MEA膜

(5)

特開2002-289206

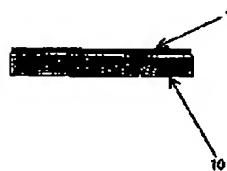
8

7  
 4.0 カソード用触媒付き電極膜のカーボンベーパー  
 4.1 カソードカバー  
 4.2 固体高分子電解質膜  
 4.3 アノード用触媒付き電極膜のカーボンベーパー  
 5.0 カソード用触媒付き電極膜のカーボンベーパー  
 5.1 カソードカバー  
 5.2 固体高分子電解質膜  
 5.3 アノード用触媒付き電極膜のカーボンベーパー  
 5.4 アノードガス用溝  
 5.5 アノード用セパレーター  
 5.6 3×3セルユニットベース板  
 6.0 カソード用円筒型セパレーター  
 6.1 MEA  
 6.3 加湿器  
 6.7 排水孔（ドレイン）  
 6.2 アノード用セパレーター  
 6.6 真空孔  
 6.4 燃料ガス（水蒸ガス）ポンベ

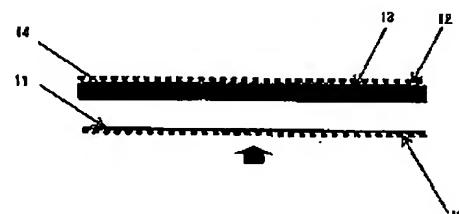
\* 6.5 酸素ガスポンベ、もしくは空気ポンベ  
 7.0 シート押さえワイヤー  
 7.1 アノード用セパレーター  
 7.2 カソード用触媒付き電極膜のカーボンベーパー  
 7.3 固体高分子電解質膜  
 7.4 アノード用触媒付き電極膜のカーボンベーパー  
 7.6, 7.7 シール板  
 8.5 負荷  
 9.0 カソードガス（水素）導入管  
 10. 9.1 アノードガス（酸素、もしくは空気）導入管  
 9.2 生成水排出管  
 10.0 固体高分子電解質膜  
 10.1, 10.2 一般的な固体高分子型燃料電池セルのセパレーター  
 10.3, 10.4 触媒層付電極  
 10.5 カソード側ガス溝  
 10.6 アノード側ガス溝

\*

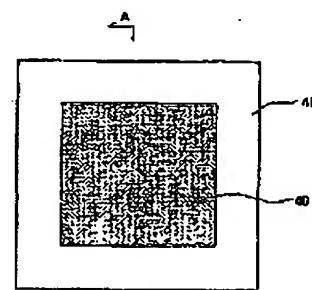
【図1】



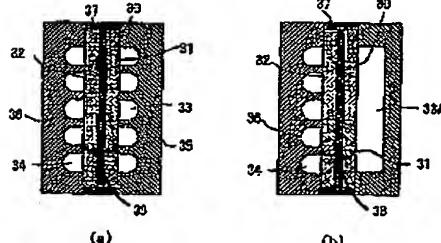
【図2】



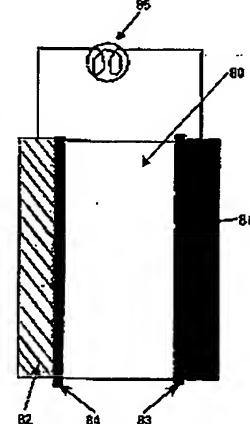
【図4】



【図3】



【図8】

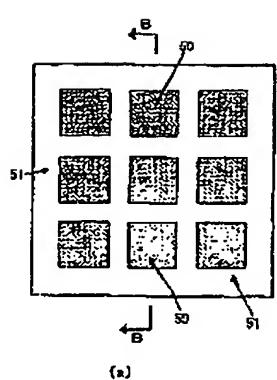


BEST AVAILABLE COPY

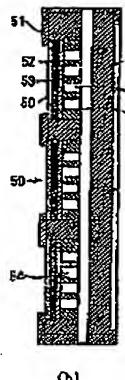
(5)

特開2002-289206

【図5】

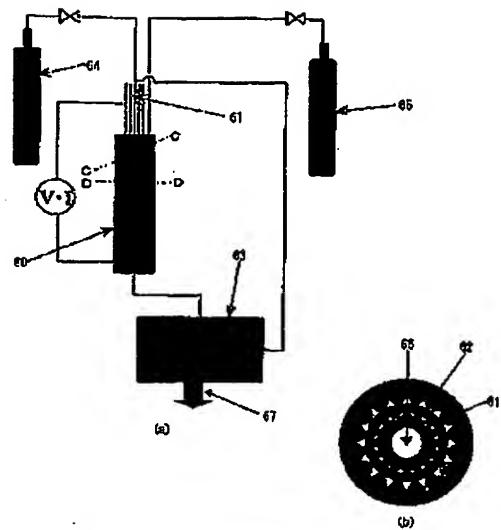


(a)

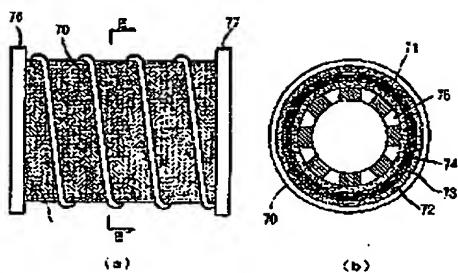


(b)

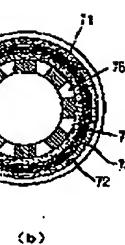
【図6】



【図7】



(a)

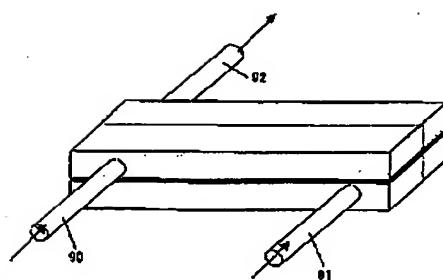


(b)

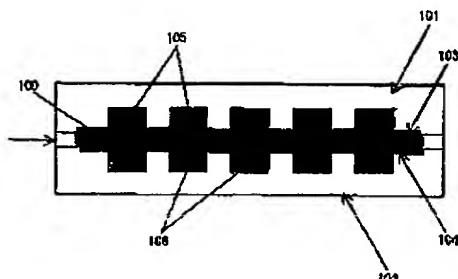


(a)

【図9】



【図10】



102

BEST AVAILABLE COPY